

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-219714

(43)Date of publication of application : 10.08.1999

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

H01M 8/24

(21)Application number : 10-021801

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO
LTD

(22)Date of filing : 03.02.1998

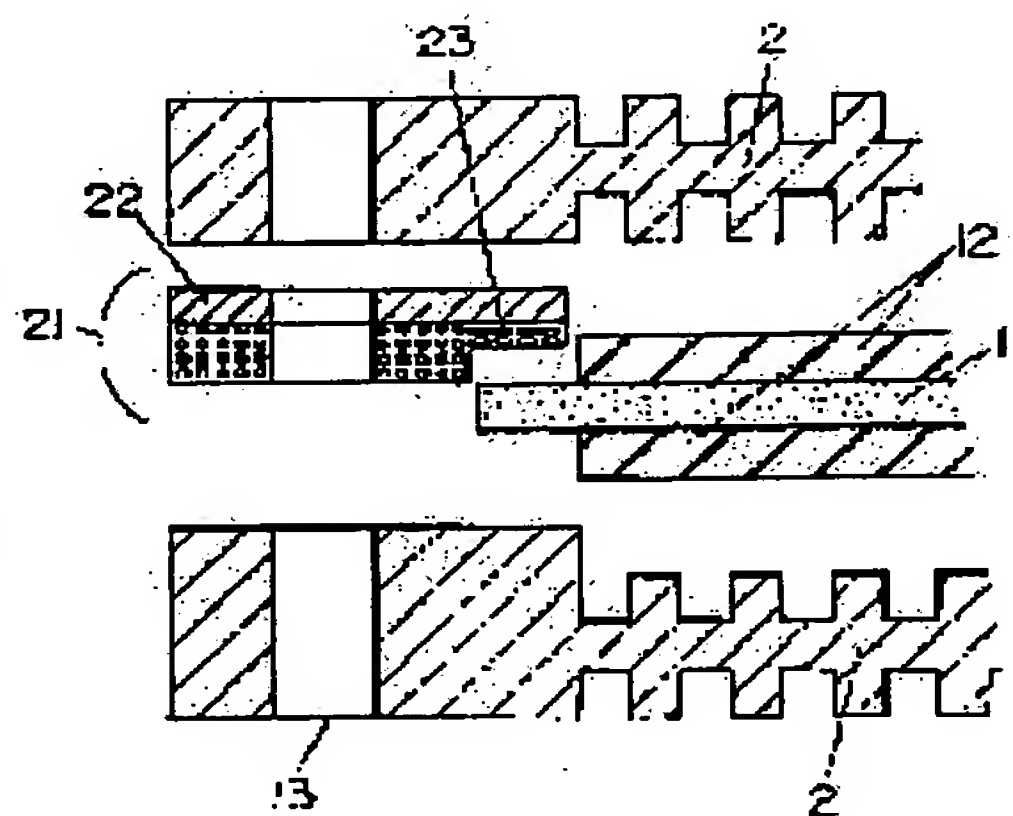
(72)Inventor : UCHIDA MAKOTO
FUKUOKA HIROKO
SUGAWARA YASUSHI
OBARA HIDEO
EDA NOBUO

(54) FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a solid polymer electrolytic fuel cell with excellent economical property by forming an adhesive layer on an economical, chemical, especially acidic-resistant elastomer layer with high sealing property and employing a gasket easy to be positioned and assembled.

SOLUTION: This fuel cell is produced by layering unit cells each of which is surrounded with a gasket 21 in the circumferential rim and constituted of a positive electrode 12, an ion exchange membrane 11, and negative electrode 12 while inserting separator plates 2 between neighboring unit cells. In the fuel cell, the gasket 21 has a structure produced by forming an elastomer layer 23 in at least one face of the separator plate 2 while sandwiching an adhesive layer 22 between the elastomer layer and the face. Olefin type rubber or blend rubber of olefin type rubber is preferable for the elastomer.



* NOTICES *

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]A fuel cell characterized by comprising the following using a gasket of structure which pasted up an elastomer layer at least on one side of a separator board via a glue line in a fuel cell which arranged a gasket on a periphery of a unit cell which consists of an anode and a negative electrode, and was laminated by intervening in a separator board.

An ion-exchange membrane which consists of solid polymers.

It is an electrode catalyst layer at least to a field which touches said ion-exchange membrane.

[Claim 2]The fuel cell according to claim 1, wherein an elastomer consists of blend rubber of olefin system rubber or olefin system rubber.

[Claim 3]The fuel cell according to claim 2 which is at least one as which olefin system rubber was chosen from a group of ethylene-propylene rubber, acrylic rubber, isobutylene isoprene rubber, or halogenated butyl rubber.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the fuel cell which uses air and oxygen as an oxidizer, using reducing agents, such as modified water matter from pure water matter or methanol, and a fossil fuel, as fuel.

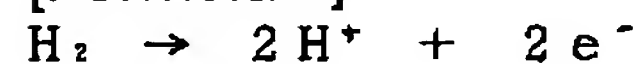
It is related especially with the gasket of a solid polyelectrolyte type fuel cell.

[0002]

[Description of the Prior Art] For example, when hydrogen is introduced as fuel and a solid polyelectrolyte type fuel cell introduces oxygen into a solid polymer electrolyte as an oxidizer using the cation exchange membrane which is a proton conductor, it is known that the next (** 1) and a reaction (** 2) will occur.

[0003]

[Formula 1]



[0004]

[Formula 2]



[0005] In a negative electrode, hydrogen dissociates into a proton and an electron. A proton moves toward an anode in the inside of cation exchange membrane, an electron moves further with a conductive separator board and the cell laminated by series in an external circuit, and results in an anode, and power generation is performed at this time. On the other hand, in an anode, the proton which has moved in the inside of cation exchange membrane, the electron which has moved in the external circuit, and the oxygen introduced from the outside react, and

water is generated. Since this reaction is accompanied by generation of heat, it generates the electrical and electric equipment, water, and heat from hydrogen and oxygen as a whole.

[0006]The point that a solid polyelectrolyte type fuel cell differs from other fuel cells greatly is a point that the electrolyte comprises an ion-exchange membrane which is a solid polymer.

Although a perfluorocarbon-sulfonic-acid film (U.S., Du Pont trade name Nafion) etc. are used for this ion-exchange membrane, in order to show proton conductivity with this sufficient film, the film needs to fully be hydrating. The method of introducing a steam in a cell and preventing desiccation of an ion-exchange membrane is taken by letting reactant gas pass in a humidifier as a method of making an ion-exchange membrane hydrating, as indicated, for example to J.Electrochem.Soc.135 (1988) 2209 page. As a method of carrying out the seal of each cell, area of an ion-exchange membrane is made larger than an electrode area as indicated, for example to J.Power Sources and 29 (1990) 367 page, The method of putting the surrounding portion which is not joined to the electrode of the ion-exchange membrane with an up-and-down gasket is taken.

[0007]The glass tissue and fluorocarbon rubber which coated polytetrafluoroethylene (trade name Teflon by the U.S. and Du Pont) as construction material of a gasket are used. Silicone rubber and fluorocarbon rubber are used in U.S. Pat. No. 4,826,741.

[0008]Drawing 2 is an outline view of the layer built cell of a common solid polyelectrolyte type fuel cell. The separator board 2 which consists of a conductive raw material of glassy carbon etc., and the insulating gasket 1 are accumulated by turns, and it is stuck to the copper collecting electrode plates 3 by the outermost separator board. It has structure which sandwiches this layered product with the end plate 5 made from stainless steel via the electric insulating plate 4, and binds between end plates tight with a bolt and a nut.

[0009]Drawing 3 is a figure showing the sectional view of the general inside cell of a layer built cell. The electrode 12 is joined by both sides of the central ion-exchange membrane 11, and the separator board 2 with a slot is located in the upper and lower sides of the zygote. The area of the ion-exchange membrane is larger than the electrode 12, inserts the circumference with a gasket, and is performing the insulation between the seal of each cell, and separator boards. As shown in the figure, in installing the gas passageway 13 in the inside of a layered product if needed (internal manifold type), a gasket also performs the seal of this gas passageway. Various structures using the case where the board with a slot of porous state is inserted in the portion of a slot, a mesh, etc. are possible for the separator board 2 with a slot.

[0010]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]However, when each cell is constituted from an above-mentioned conventional method in a stack, in the work which installs a gasket sheet correctly on a separator board, and puts the zygote of the ion-exchange membrane 11 and the electrode 12, positioning of a sheet shaped soft gasket is difficult, and working efficiency is

bad. Or there was a problem of being easy to cause the sealing failure by position gap.

[0011]When high-pressure gas was used for an inside, there was a problem that an elastomer layer escaped on the stack outside.

[0012]Fluorocarbon rubber is expensive and silicone rubber had the problem of a siloxane bond having gone out gradually and deteriorating by the acidity of the sulfone group of an ion-exchange membrane.

[0013]This invention solves above-mentioned conventional SUBJECT, it is cheap, chemical resistance, especially acid resistance are strong, a glue line is provided in the elastomer layer which demonstrates high sealing nature, and it aims at providing the solid polyelectrolyte type fuel cell with high economical efficiency using the easy gasket of the assembly that it is easy to position.

[0014]

[Means for Solving the Problem]An ion-exchange membrane which a fuel cell of this invention becomes from a solid polymer in order to solve above-mentioned SUBJECT, In a fuel cell which arranged a gasket on a periphery of a unit cell which consists of an anode and a negative electrode which have an electrode catalyst layer at least in a field which touches this ion-exchange membrane, and was laminated by intervening in a separator board, A gasket of structure which pasted up an elastomer layer at least on one side of a separator board via a glue line is used. By this, in order to paste up a gasket on a separator in the case of an assembly of a cell stack, causing a position gap is lost.

[0015]

[Embodiment of the Invention]This invention arranges a gasket on the periphery of the ion-exchange membrane which consists of solid polymers, and the unit cell which consists of the anode and negative electrode which have an electrode catalyst layer at least in the field which touches said ion-exchange membrane, It is a fuel cell using the gasket of the structure which pasted up the elastomer layer at least on one side of the separator board via the glue line in the fuel cell laminated by intervening in the separator board, In this composition, work can be done speedily, without causing a position gap, in order to paste up a gasket on a separator in the case of the assembly of a cell stack. Since the elastomer layer has pasted the separator board, also when high-pressure gas is used for an inside, an elastomer layer does not escape outside by the adhesive strength of an elastomer layer and a substrate.

[0016]It is preferred as an elastomer to use the blend rubber of olefin system rubber or olefin system rubber. When the elastomer of the olefin system which completely or hardly includes an unsaturated bond in polymer backbone is used, Compared with diene system rubbers, such as the isoprene rubber, butadiene series rubber and nitrile rubber which have a double bond in a main chain, and chloroprene rubber, it excels in chemical resistance, heat resistance, and weatherability. Compared with fluorocarbon rubber or silicone rubber, it is cheap.

[0017]As olefin system rubber, ethylene-propylene rubber, acrylic rubber, isobutylene isoprene rubber, halogenated butyl rubber, etc. are preferred.

[0018](Embodiment) The fuel cell of this invention is explained hereafter, referring to drawings.

[0019]Drawing 1 shows the section of the cell of Example 1 of this invention. The gasket 21 in a figure pastes up the elastomer layer 23 of the ethylene-propylene rubber (EPDM) of a 0.7-mm-thick olefin system on one side of a separator board via the glue line 22. The gasket 21 of this invention can perform an ion-exchange membrane and the seal of both between separators between separator boards, the portion which touches the ion-exchange membrane 11 absorbing the thickness of the ion-exchange membrane 11 by being further compressed rather than the portion pinched by separator board 2. With the sheet of only an elastomer layer, since it is very soft, if the internal pressure of a cell and a gas passageway turns into high voltage, to a gasket shifting outside, and being blown and turned off, in the case of the gasket of this invention, gap of a sponge layer will be prevented by the adhesive strength of a glue line, it will blow by it, and a piece will not be raised to it. It is possible to do work speedily, without causing a position gap of a gasket at the time of an assembly in the case of the assembly of a cell stack, since a gasket can be beforehand pasted up on a separator board. It excels also in heat resistance and acid resistance, and is uninfluential also in the long-term operational test of a fuel cell.

[0020]Although the aforementioned construction material was used as a material of a gasket in this embodiment, since the operating temperature is 150 °C or less, this solid polyelectrolyte type fuel cell can use various spring materials, such as fluorocarbon rubber. However, since an ion-exchange membrane shows acidity with a sulfonic group as the exchange group, and water generates and reactant gas is humidified, acid resistance, waterproof steam nature, hot water resistance, etc. are required for the contact surface of a gasket. If conditions, such as the above heat resistance, acid resistance, waterproof steam nature, and hot water resistance, are fulfilled, it will also be possible to choose what kind of construction material, and this invention will not be limited to the material of an example.

[0021]Although this embodiment showed how to carry out the seal of the ion-exchange membrane from one way, using a gasket one sheet, the same effect is acquired even if it uses the method of putting an ion-exchange membrane, using a gasket two sheets.

[0022]

[Example](Example 1) The fuel cell was produced by composition of drawing 1 shown by the embodiment. The gasket 21 should paste up the elastomer layer 23 of the ethylene-propylene rubber (EPDM) of a 0.7-mm-thick olefin system on one side of the separator board via the glue line 22. In the case of the gasket of this invention, gap of a sponge layer was prevented by the adhesive strength of the glue line, it blew by it, and a piece was not raised in it. On the

occasion of the assembly of a cell stack, it became possible to do work speedily, without having assembled, since the gasket was beforehand pasted up on the separator board, and sometimes causing a position gap of a gasket.

[0023]Into 80 more ** hot water, EPDM was contacted to the ion-exchange membrane, it held for three months, and the hot water resistance of an elastomer raw material and acid resistance were examined. There is no change in EPDM in any way, and high endurance was shown. Also in the long-term operational test of 5000 hours of a fuel cell, it was uninfluential.

[0024](Example 2) The elastomer of the above-mentioned example was made into the isobutylene isoprene rubber (IIR) of an olefin system, and also it had the same composition as Example 1. In the above and a heat-resistant and acid-proof examination, it is changeless like EPDM, and degradation was not looked at by the long-term operational test of the fuel cell, either.

[0025](Example 3) The elastomer of the above-mentioned example was made into the acrylic rubber (ACM) of an olefin system, and also it had the same composition as Example 1. In the above and a heat-resistant and acid-proof examination, it is changeless like EPDM, and degradation was not looked at by the long-term operational test of the fuel cell, either.

[0026](Example 4) The elastomer of the above-mentioned example was made into the halogenated butyl rubber (X-IIR) of an olefin system, and also it had the same composition as Example 1. In the above and a heat-resistant and acid-proof examination, it is changeless like EPDM, and degradation was not looked at by the long-term operational test of the fuel cell, either.

[0027](Comparative example 1) The elastomer of the above-mentioned example was made into the nitrile rubber (NBR) of a diene system, and also it had the same composition as Example 1. The ion-exchange membrane discolored in the above and a heat-resistant and acid-proof examination, and the elasticity of rubber was falling.

[0028](Comparative example 2) The elastomer of the above-mentioned example was made into chloroprene rubber (CR) of a diene system, and also it had the same composition as Example 1. 46 days after setting to the above and a heat-resistant and acid-proof examination, not less than 160% of swelling was observed, and the elasticity of rubber was falling.

[0029](Comparative example 3) The elastomer of the above-mentioned example was made into silicone rubber, and also it had the same composition as Example 1. 46 days after setting to the above and a heat-resistant and acid-proof examination, it was observed that the rubber of the portion in contact with an ion-exchange membrane is deteriorating and carrying out pulverization. In the long-term operational test of a fuel cell, the contact portion of an ion-exchange membrane and a silicon gasket was carrying out pulverization to the shape of silica (SiO_2).

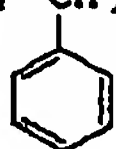
[0030](Comparative example 4) The elastomer of the above-mentioned example was made

into the styrene butadiene rubber (SBR) of a butadiene series, and also it had the same composition as Example 1. One month after setting to the above and a heat-resistant and acid-proof examination, it was observed that rubber is carrying out swelling degradation.

[0031]Below, the structural formula of the elastomer of the above-mentioned example and a comparative example is packed into Table 1, and is shown.

[0032]

[Table 1]

	エラストマー	構造式
実施例 1	エチレン・プロピレンゴム EPM ジエンゴム EPDM	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{-(CH}_2\text{-CH)}_n\text{-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \quad \text{ランダム共重合体}$ $\text{-(CH}_2\text{-CH}_2\text{)}_m\text{-(CH}_2\text{-CH)}_n\text{-(C}_5\text{H}_7\text{)}_p\text{-}$ <p style="text-align: right;">同上 ENB タイプ</p>
実施例 2	ブチルゴム IIR	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{-(CH}_2\text{-C)}_m\text{-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \quad \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{-(CH}_2\text{-C=CH-CH}_2\text{)}_n\text{-} \end{array} \quad \begin{array}{l} \text{イソプレン含量} \\ \text{2モル\%以下} \end{array}$
実施例 3	アクリルゴム ACM ANM	$\begin{array}{c} \text{-(CH}_2\text{-CH)}_m\text{-} \\ \\ \text{O-C-OR} \end{array} \quad \begin{array}{c} \text{-(CH}_2\text{-CH)}_n\text{-} \\ \\ \text{OCH}_2\text{CH}_2\text{Cl} \end{array} \quad \begin{array}{l} \text{R: エチル基,} \\ \text{ブチル基など} \end{array}$ $\begin{array}{c} \text{-(CH}_2\text{-CH)}_m\text{-} \\ \\ \text{O-C-OR} \end{array} \quad \begin{array}{c} \text{-(CH}_2\text{-CH)}_n\text{-} \\ \\ \text{CN} \end{array}$
比較例 1	ニトリルゴム NBR	$\text{-(CH}_2\text{-CH=CH-CH}_2\text{)}_m\text{-(CH}_2\text{-CH)}_n\text{-}$ <p style="text-align: right;">ランダム共重合体 CN</p>
比較例 2	クロロプレンゴム CR	$\begin{array}{c} \text{Cl} \\ \\ \text{-(CH}_2\text{-C-CH=CH}_2\text{)}_n\text{-} \end{array} \quad \text{高トランス}$
比較例 3	シリコーンゴム Q	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{-(Si-O)}_m\text{-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \quad \begin{array}{c} \text{CH=CH}_2 \\ \\ \text{-(Si-O)}_n\text{-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \quad \begin{array}{l} \text{メチルビニルシリコーンゴム (VMQ)} \end{array}$ $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{-(Si-O)}_m\text{-} \\ \\ \text{CH}_2\text{CH}_2\text{CF}_3 \end{array} \quad \begin{array}{c} \text{CH=CH}_2 \\ \\ \text{-(Si-O)}_n\text{-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \quad \begin{array}{l} \text{フルオロシリコーン} \\ \text{ゴム (FVMQ)} \end{array}$
比較例 4	スチレン・ブタジエンゴム SBR	$\text{-(CH}_2\text{-CH=CH-CH}_2\text{)}_m\text{-(CH}_2\text{-CH)}_n\text{-}$ <p style="text-align: right;">ランダム共重合体</p> <p style="text-align: center;"></p>

[0033]The same effect was acquired when the above-mentioned elastomers or the material

blended with other elastomers was used.

[0034]

[Effect of the Invention]As mentioned above, according to this invention, it is cheap and chemical resistance, especially acid resistance are strong, a glue line can be ****(ed) to the elastomer layer which demonstrates high sealing nature, and it can be provided with the solid polyelectrolyte type fuel cell with high economical efficiency using the easy gasket of the assembly that it is easy to position.

[Translation done.]

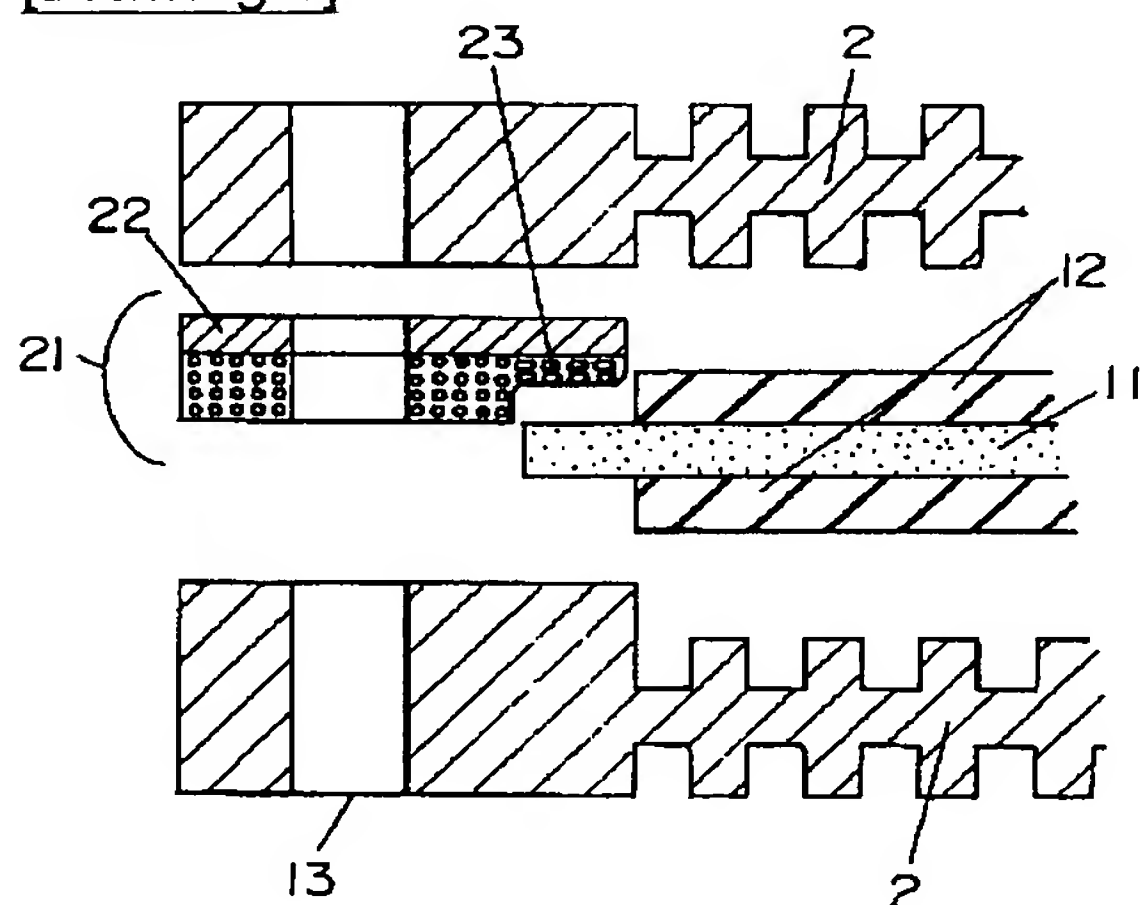
*** NOTICES ***

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

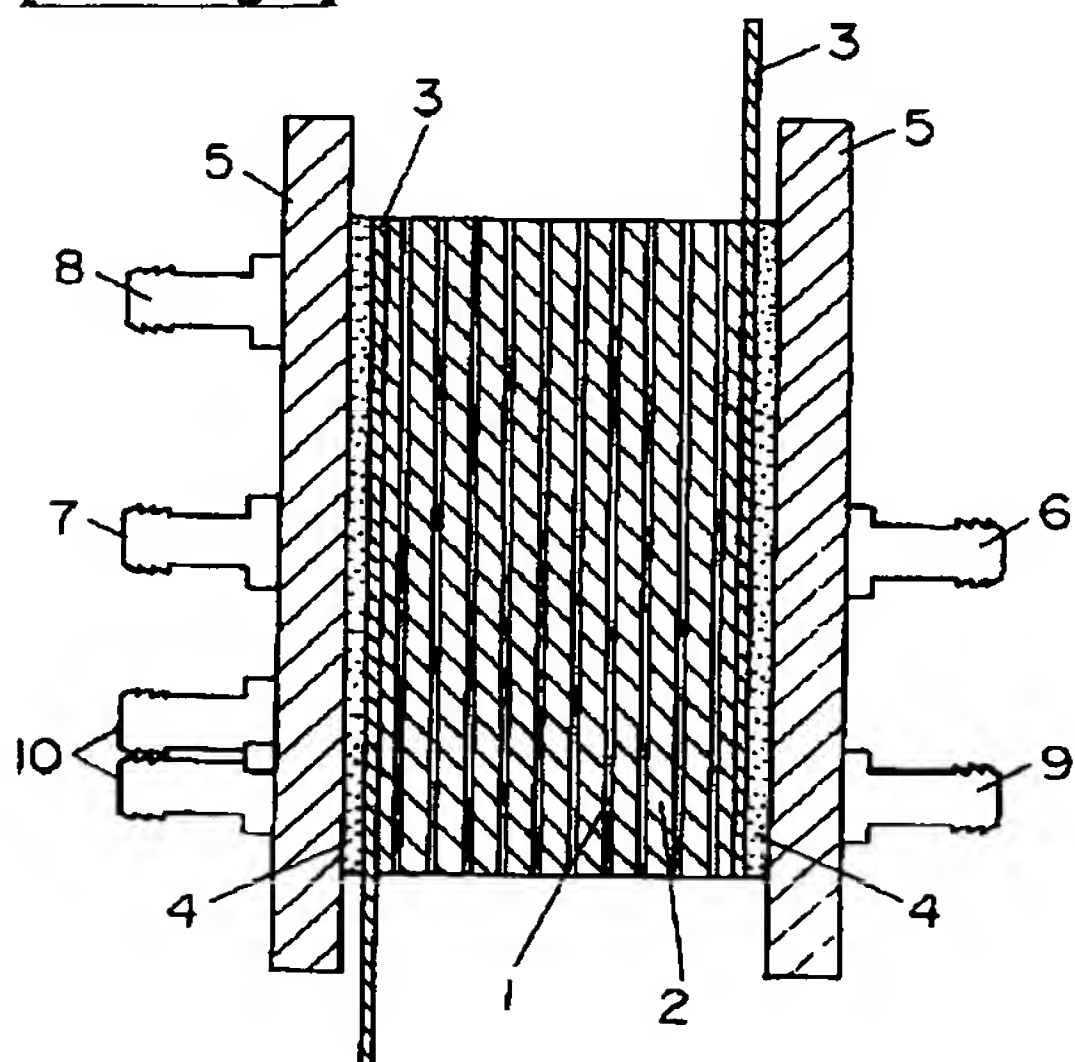
- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

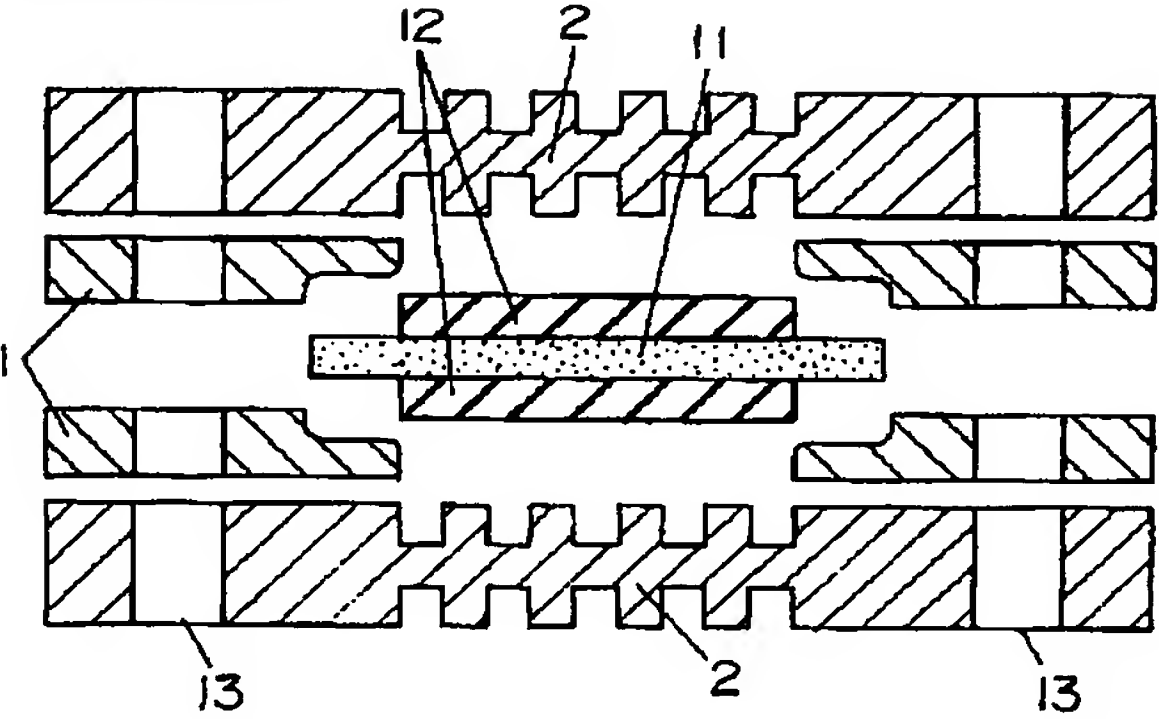
[Drawing 1]



[Drawing 2]



[Drawing 3]



[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-219714

(43)公開日 平成11年(1999) 8月10日

(51)Int.Cl.⁶
H 0 1 M 8/02
8/10
8/24

識別記号

F I
H 0 1 M 8/02 E
8/10
8/24 T

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平10-21801

(22)出願日 平成10年(1998) 2月3日

(71)出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72)発明者 内田 誠

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 福岡 裕子

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 菅原 靖

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74)代理人 弁理士 滝本 智之 (外1名)

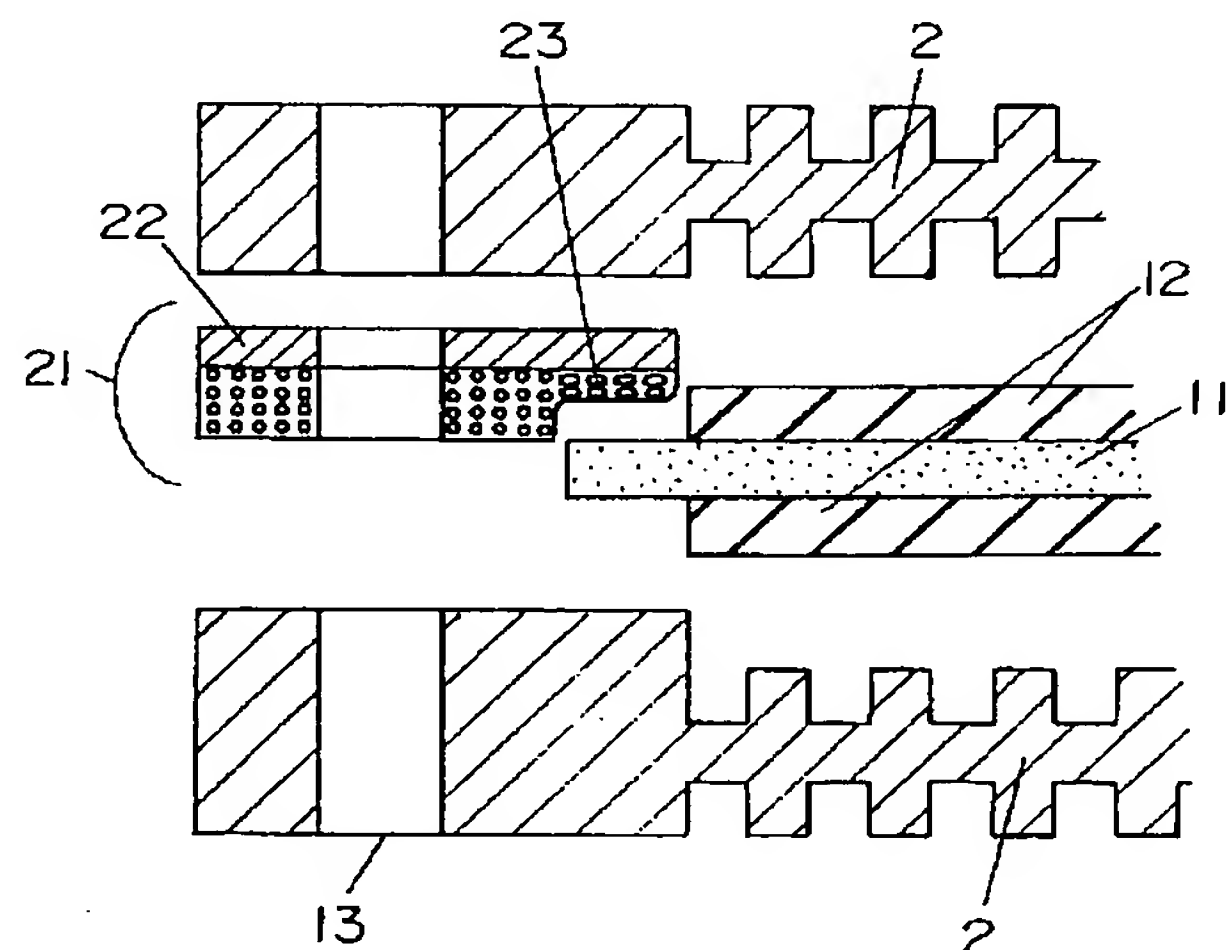
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 燃料電池

(57)【要約】

【課題】 安価で、耐薬品性特に耐酸性が強く、高いシール性を発揮するエラストマー層に接着層を設け、位置決めしやすく組立の容易なガスケットを用いた、経済性の高い固体高分子電解質型燃料電池を提供することすることを目的とする。

【解決手段】 正極12、電解質板11、負極12からなる単位セルの周縁にガスケット31を配し、セパレータ板2を介在して積層された燃料電池において、ガスケットはセパレータ板2の少なくとも片面にエラストマー層33を接着層を介して接着した構成とする。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子からなるイオン交換膜と、前記イオン交換膜に接する面に少なくとも電極触媒層を有する正極および負極からなる単位セルの周縁にガスケットを配し、セパレータ板を介在して積層された燃料電池において、セパレータ板の少なくとも片面にエラストマー層を接着層を介して接着した構造のガスケットを用いた燃料電池。

【請求項2】 エラストマーがオレフィン系ゴムまたはオレフィン系ゴムのブレンドゴムからなることを特徴とした請求項1記載の燃料電池。

【請求項3】 オレフィン系ゴムがエチレン-プロピレンゴム、アクリルゴム、ブチルゴムあるいはハロゲン化ブチルゴムの群より選ばれた少なくとも一つである請求項2記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

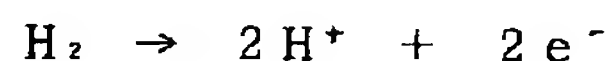
【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料として純水素、またはメタノール及び化石燃料からの改質水素などの還元剤を用い、空気や酸素を酸化剤とする燃料電池に関するものであり、特に固体高分子電解質型燃料電池のガスケットに関するものである。

【0002】

【従来の技術】 例えば固体高分子電解質型燃料電池は、固体高分子電解質にプロトン伝導体であるカチオン交換膜を用い、燃料として水素を、酸化剤として酸素を導入した場合には、次の(化1)、(化2)反応が起こることが知られている。

【0003】

【化1】



【0004】

【化2】



【0005】 負極では水素がプロトンと電子に解離する。プロトンはカチオン交換膜中を正極に向かって移動し、電子は導電性のセパレータ板と直列に積層されたセルとさらに外部の回路を移動して正極に至り、このとき発電が行われる。一方、正極ではカチオン交換膜中を移動してきたプロトンと外部回路を移動してきた電子と外部から導入された酸素とが反応し水を生成する。この反応は発熱を伴うので全体として水素と酸素から電気と水と熱を発生する。

【0006】 固体高分子電解質型燃料電池が他の燃料電池と大きく異なる点は、電解質が固体高分子であるイオン交換膜で構成されている点である。このイオン交換膜にはパーフルオロカーボンスルホン酸膜（米国、デュポン社製 商品名ナフィオン）等が用いられるが、この膜が十分なプロトン導電性を示すためには膜が十分に水和している必要がある。イオン交換膜を水和させる方法と

しては、例えば J. Electrochem. Soc. 135 (1988) 2209 頁に記載されているように反応ガスを加湿器に通すことによって水蒸気をセル内に導入してイオン交換膜の乾燥を防ぐ方法が取られる。また、各セルをシールする方法としては、例えば J. Power Sources, 29 (1990) 367 頁に記載されているようにイオン交換膜の面積を電極面積よりも大きくし、イオン交換膜の電極と接合されていない周囲部分を上下のガスケットで挟み込む方法が取られる。

【0007】 ガスケットの材質としてはポリテトラフルオロエチレン（米国、デュポン社製商品名テフロン）をコーティングしたガラス繊維布やフッ素ゴムが用いられている。また、米国特許第4,826,741号ではシリコンゴムやフッ素ゴムが用いられている。

【0008】 図2は、一般的な固体高分子電解質型燃料電池の積層電池の外観図である。グラッシーカーボンなどの導電性の素材からなるセパレータ板2と絶縁性のガスケット1が交互に積み重ねられ、最外側のセパレータ板に銅製の集電板3が密着されている。この積層体を絶縁板4を介してステンレス製のエンドプレート5ではさみ、エンドプレート間をボルトとナットで締めつける構造となっている。

【0009】 図3は一般的な積層電池内部セルの断面図を示した図である。中央のイオン交換膜11の両面に電極12が接合され、その接合体の上下に溝付きのセパレータ板2が位置している。イオン交換膜の面積は電極12よりも大きくなっており、周囲をガスケットではさみ込み、各セルのシールとセパレータ板どうし間の絶縁を行っている。図に示したように必要に応じて積層体の内部にガス通路13を設置する場合（内部マニホールド型）には、ガスケットがこのガス通路のシールも行う。溝付きのセパレータ板2は溝の部分に多孔質状の溝付き板をはめ込む場合やメッシュなどを用いるなどの様々な構造が可能である。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら上記従来の方法では、各セルをスタックに構成する際、ガスケットシートをセパレータ板上に正確に設置し、イオン交換膜11と電極12の接合体を挟み込む作業において、柔軟かく、シート状のガスケットの位置決めが難しく、作業効率が悪い。もしくは位置ずれによるシール不良を起しやすいう問題点があった。

【0011】 また、内部に高圧のガスを用いた場合に、エラストマー層がスタック外側に逃げる問題点があった。

【0012】 さらに、フッ素ゴムは高価であり、シリコンゴムはイオン交換膜のスルホン基の酸性によって徐々にシロキサン結合が切れ、劣化する問題点があった。

【0013】 本発明は上記従来の課題を解決するもの

で、安価で、耐薬品性特に耐酸性が強く、高いシール性を発揮するエラストマー層に、接着層を設け、位置決めしやすく組立の容易なガスケットを用いた、経済性の高い固体高分子電解質型燃料電池を提供することを目的とする。

【0014】

【課題を解決するための手段】上記の課題を解決するために、本発明の燃料電池は固体高分子からなるイオン交換膜と、このイオン交換膜に接する面に少なくとも電極触媒層を有する正極および負極からなる単位セルの周縁にガスケットを配し、セパレータ板を介在して積層された燃料電池において、セパレータ板の少なくとも片面にエラストマー層を接着層を介して接着した構造のガスケットを用いたものである。このことにより、セルスタックの組立の際に、ガスケットをセパレータに接着するために位置ずれを起こすことがなくなる。

【0015】

【発明の実施の形態】本発明は、固体高分子からなるイオン交換膜と、前記イオン交換膜に接する面に少なくとも電極触媒層を有する正極および負極からなる単位セルの周縁にガスケットを配し、セパレータ板を介在して積層された燃料電池において、セパレータ板の少なくとも片面にエラストマー層を接着層を介して接着した構造のガスケットを用いた燃料電池であり、この構成では、セルスタックの組立の際にガスケットをセパレータに接着するために位置ずれを起こすことなく、スピーディに作業を進めることができる。また、エラストマー層がセパレータ板に接着されているために、内部に高圧のガスを用いた場合にもエラストマー層と基板との接着力によってエラストマー層が外側に逃げることはない。

【0016】さらに、エラストマーとして、オレフィン系ゴムあるいはオレフィン系ゴムのブレンドゴムを用いることが好ましい。ポリマー主鎖中に不飽和結合を全く、またはほとんど含まないオレフィン系のエラストマーを用いた場合、主鎖中に二重結合を持つイソブレン系ゴムやブタジエン系ゴム、ニトリルゴムやクロロブレンゴムなどのジエン系ゴムに比べて、耐薬品性、耐熱性、耐候性に優れている。また、フッ素ゴムやシリコンゴムに比べて安価である。

【0017】オレフィン系ゴムとしては、エチレンプロピレンゴム、アクリルゴム、ブチルゴム、ハロゲン化ブチルゴムなどが好ましい。

【0018】（実施の形態）以下、本発明の燃料電池について、図面を参照しながら説明する。

【0019】図1は本発明の実施例1のセルの断面を示す。図中ガスケット21は、セパレータ板の片面に厚み0.7mmのオレフィン系のエチレンプロピレンゴム（EPDM）のエラストマー層23を接着層22を介して接着したものである。本発明のガスケット21は、イオン交換膜11に接する部分が、セパレータ板2どうし

に挟まれた部分よりもさらに圧縮されることによってイオン交換膜11の厚みを吸収しつつセパレータ板間、イオン交換膜とセパレータ間の両方のシールを行うことができる。エラストマー層だけのシートでは非常に柔らかいためにセル及びガス通路の内圧が高圧になるとガスケットが外側にずれて吹き切れてしまうのに対して、本発明のガスケットの場合には、接着層の接着力によってスポンジ層のズレが防止されて吹き切れを起こさない。また、セルスタックの組立の際には、ガスケットをセパレータ板に予め接着しておくことができるために、組み立て時にガスケットの位置ずれを起こすことなく、スピーディに作業を進めることが可能である。さらに、耐熱性、耐酸性にも優れており、燃料電池の長期作動試験においても影響はない。

【0020】なお、本実施の形態ではガスケットの材料として前記の材質を用いたが、この固体高分子電解質型燃料電池は作動温度が150℃以下であるので、フッ素ゴムなど種々の弾性材料が使用できる。ただし、イオン交換膜がその交換基としてスルホン酸基をもち酸性を示し、また水が生成し反応ガスが加湿されるために、ガスケットの接触面は耐酸性、耐水蒸気性、耐熱水性等が必要である。以上の耐熱性、耐酸性、耐水蒸気性、耐熱水性等の条件が満たされればどのような材質を選択することも可能であり、本発明は実施例の材料に限定されない。

【0021】さらに、本実施の形態ではガスケットを1枚使用してイオン交換膜を一方向からシールする方法を示したが、ガスケットを2枚使用してイオン交換膜を挟み込む方法を使っても同様の効果が得られる。

【0022】

【実施例】（実施例1）実施の形態で示した図1の構成により燃料電池を作製した。ガスケット21は、セパレータ板の片面に厚み0.7mmのオレフィン系のエチレンプロピレンゴム（EPDM）のエラストマー層23を接着層22を介して接着したものとした。本発明のガスケットの場合には、接着層の接着力によってスポンジ層のズレが防止されて吹き切れを起こさなかった。また、セルスタックの組立の際には、ガスケットをセパレータ板に予め接着しておくことができたために組み立て時にガスケットの位置ずれを起こすことなく、スピーディに作業を進めることが可能となった。

【0023】さらに80℃の熱水中においてEPDMをイオン交換膜と接触させて3ヶ月間保持し、エラストマー素材の耐熱水性、耐酸性を試験した。EPDMには何ら変化無く、高い耐久性を示した。また、燃料電池の5000時間の長期作動試験においても影響はなかった。

【0024】（実施例2）上記実施例のエラストマーをオレフィン系のブチルゴム（IIR）とした他は、実施例1と同様の構成とした。EPDMと同様に上記、耐熱性、耐酸性の試験において変化無く、燃料電池の長期作

動試験にも劣化は見られなかった。

【0025】（実施例3）上記実施例のエラストマーをオレフィン系のアクリルゴム（ACM）とした他は、実施例1と同様の構成とした。EPDMと同様に上記、耐熱性、耐酸性の試験において変化無く、燃料電池の長期作動試験にも劣化は見られなかった。

【0026】（実施例4）上記実施例のエラストマーをオレフィン系のハロゲン化ブチルゴム（X-IIR）とした他は、実施例1と同様の構成とした。EPDMと同様に上記、耐熱性、耐酸性の試験において変化無く、燃料電池の長期作動試験にも劣化は見られなかった。

【0027】（比較例1）上記実施例のエラストマーをジェン系のニトリルゴム（NBR）とした他は、実施例1と同様の構成とした。上記、耐熱性、耐酸性の試験においてイオン交換膜が変色し、ゴムの弾性が低下していた。

【0028】（比較例2）上記実施例のエラストマーをジェン系のクロロプレンゴム（CR）とした他は、実施例1と同様の構成とした。上記、耐熱性、耐酸性の試験

において46日後に160%以上の膨潤が観察され、ゴムの弾性が低下していた。

【0029】（比較例3）上記実施例のエラストマーをシリコンゴムとした他は、実施例1と同様の構成とした。上記、耐熱性、耐酸性の試験において46日後には、イオン交換膜と接触していた部分のゴムが劣化し微粉化しているのが観察された。また、燃料電池の長期作動試験においては、イオン交換膜とシリコンガスキットの接触部がシリカ（SiO₂）状に微粉化していた。

10 【0030】（比較例4）上記実施例のエラストマーをブタジエン系のスチレンブタジエンゴム（SBR）とした他は、実施例1と同様の構成とした。上記、耐熱性、耐酸性の試験において1ヶ月後には、ゴムが膨潤劣化しているのが観察された。

【0031】以下に、上記実施例と比較例のエラストマーの構造式を表1にまとめて示す。

【0032】

【表1】

	エラストマー	構造式
実施例 1	エチレン・プロピレンゴム EPM EPDM	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{-(CH}_2\text{-CH}_2\text{)-} \text{-(CH}_2\text{-CH)-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$ ランダム共重合体 $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{-(CH}_2\text{-CH}_2\text{)-} \text{-(CH}_2\text{-CH)-} \text{-(C}_6\text{H}_4\text{-CH-CH}_3\text{)-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$ 同上 ENB タイプ
実施例 2	ブチルゴム IIR	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \quad \text{CH}_3 \\ \quad \\ \text{-(CH}_2\text{-C)-} \text{-(CH}_2\text{-C=CH-CH}_2\text{)-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$ イソプレン含量 2 モル%以下
実施例 3	アクリルゴム ACM ANM	$\begin{array}{c} \text{O=C-OR} \quad \text{OCH}_2\text{CH}_2\text{Cl} \\ \quad \\ \text{-(CH}_2\text{-CH)-} \text{-(CH}_2\text{-CH)-} \\ \quad \\ \text{O=C-OR} \quad \text{CN} \end{array}$ R: エチル基、ブチル基など
比較例 1	ニトリルゴム NBR	$\begin{array}{c} \text{CN} \\ \\ \text{-(CH}_2\text{-CH=CH-CH}_2\text{)-} \text{-(CH}_2\text{-CH)-} \\ \\ \text{CN} \end{array}$ ランダム共重合体
比較例 2	クロロプレンゴム CR	$\begin{array}{c} \text{Cl} \\ \\ \text{-(CH}_2\text{-C-CH=CH}_2\text{)-} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$ 高トランス
比較例 3	シリコンゴム Q	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \quad \text{CH=CH}_2 \\ \quad \\ \text{-(Si-O)-} \text{-(Si-O)-} \\ \quad \\ \text{CH}_3 \quad \text{CH}_3 \end{array}$ メチルビニルシリコンゴム (VMQ) $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \quad \text{CH=CH}_2 \\ \quad \\ \text{-(Si-O)-} \text{-(Si-O)-} \\ \quad \\ \text{CH}_2\text{CH}_2\text{CF}_3 \quad \text{CH}_3 \end{array}$ フルオロシリコンゴム (FVMQ)
比較例 4	スチレン・ブタジエンゴム SBR	$\begin{array}{c} \text{-(CH}_2\text{-CH=CH-CH}_2\text{)-} \text{-(CH}_2\text{-CH)-} \\ \\ \text{C}_6\text{H}_5 \end{array}$ ランダム共重合体

【0033】なお、上記エラストマーどうし、または他のエラストマーとブレンドした材料を用いた場合においても同様の効果が得られた。

【0034】

【発明の効果】以上のように本発明によれば、安価で、耐薬品性特に耐酸性が強く、高いシール性を発揮するエラストマー層に、接着層を設けた、位置決めしやすく組立の容易なガスケットを用いた、経済性の高い固体高分子電解質型燃料電池を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例におけるセルの断面図

【図2】従来の固体高分子電解質型燃料電池の外観図

【図3】従来のセルの断面図

【符号の説明】

1 ガスケット

2 セパレータ板

3 集電板

4 絶縁板

5 エンドプレート

6 水素入口

7 水素出口

8 酸素入口

9 酸素出口

10 排水ドレン

11 イオン交換膜

12 電極

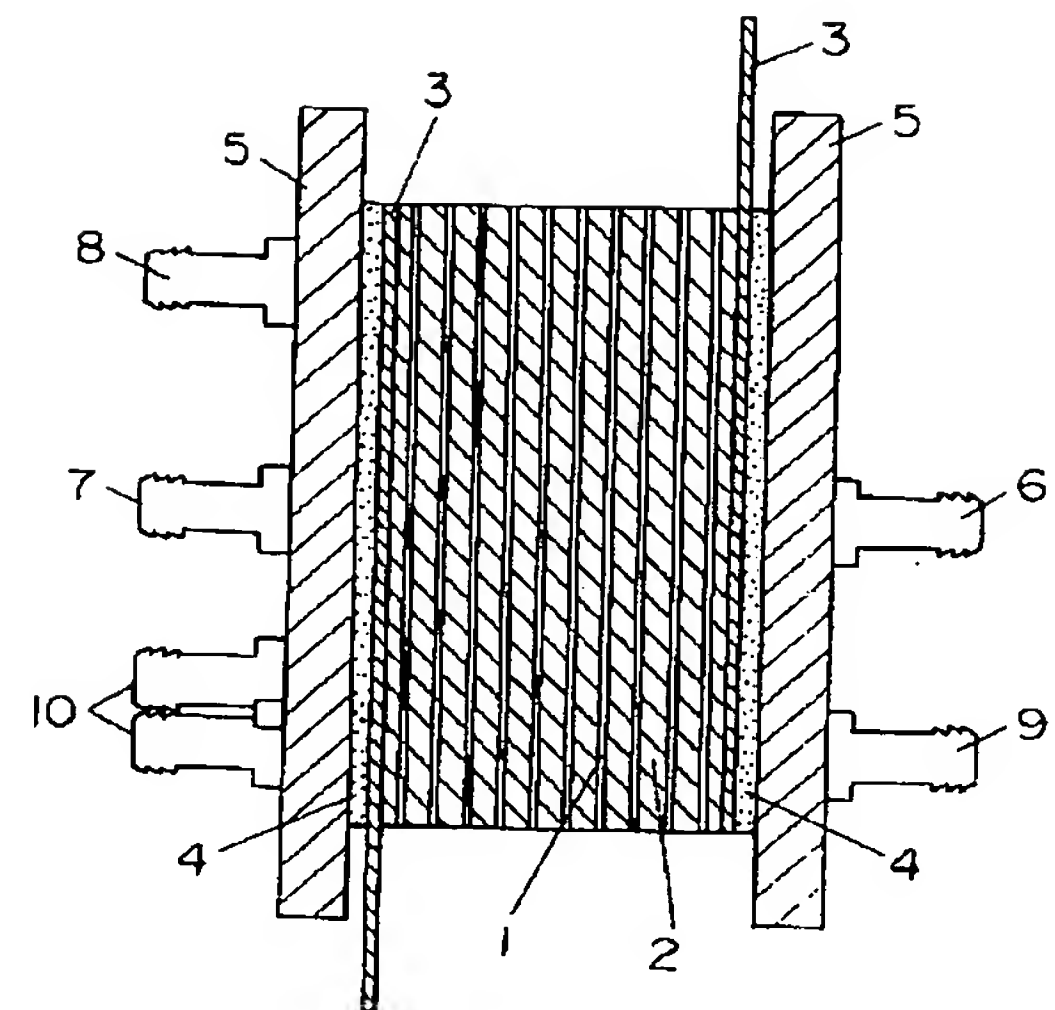
13 ガス通路

21 実施例1のガスケット

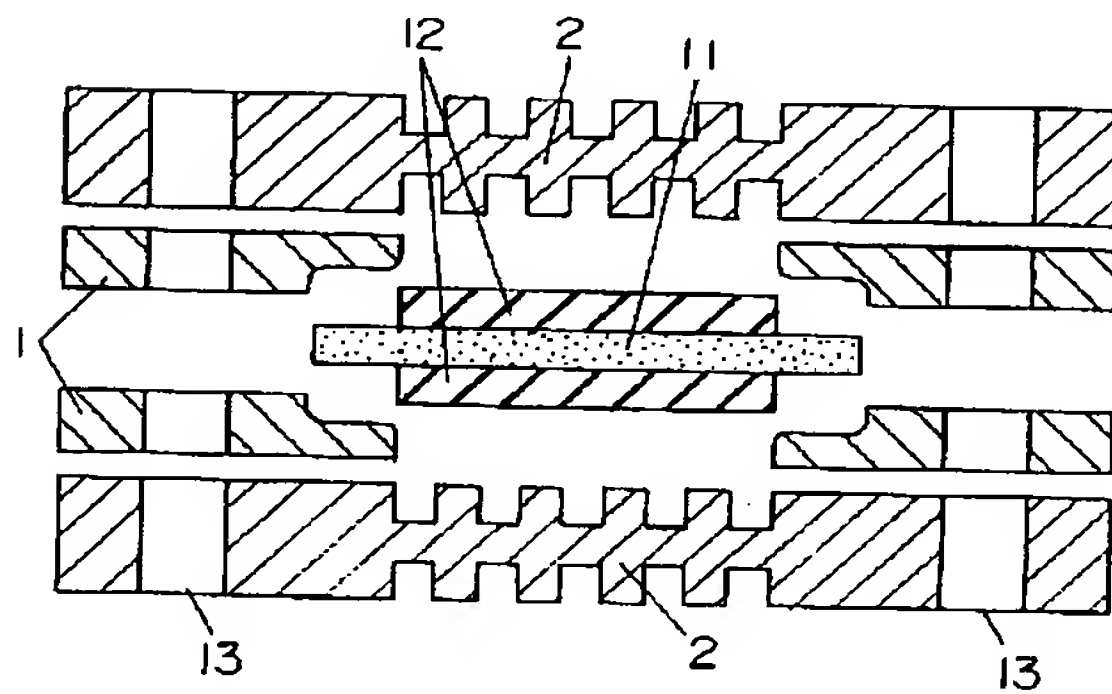
22 接着層

50 23 スポンジ層

【図 2】



【図 3】



(72)発明者 江田 信夫
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内